WORLD INTELLECTUAL PROPERTY ORGANIZATION International Bureau



INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(51) International Patent Classification 6: (11) International Publication Number: WO 97/44416 A1 C10M 105/38 (43) International Publication Date: 27 November 1997 (27.11.97) (81) Designated States: AU, BR, CA, CN, JP, NO, PL, SG, European patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, PCT/US97/08624 (21) International Application Number: (22) International Filing Date: 21 May 1997 (21.05.97) GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Published (30) Priority Data: 08/652,012 21 May 1996 (21.05.96) US With international search report. Before the expiration of the time limit for amending the

(71) Applicant: EXXON CHEMICAL PATENTS INC. [US/US]; 5200 Bayway Drive, Baytown, TX 77520-5200 (US).

(72) Inventor: DUNCAN, Carolyn, B.; 17722 Sharpsburg Avenue, Baton Rouge, LA 70817 (US).

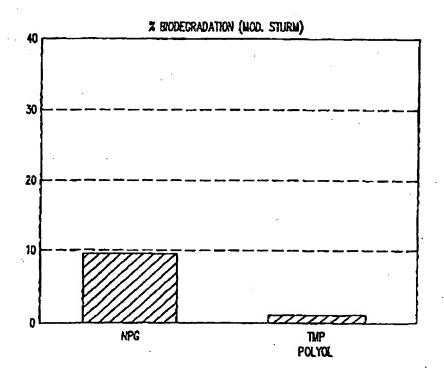
(74) Agents: JORDAN, Richard, D. et al.; Exxon Chemical Company, P.O. Box 2149, Baytown, TX 77522-2149 (US).

claims and to be republished in the event of the receipt of

(54) Title: BIODEGRADABLE SYNTHETIC ESTER BASE STOCKS FORMED FROM BRANCHED OXO ACIDS

(57) Abstract

A biodegradable lubricant which is prepared from: about 60-99 % by weight of at least one blodegradable synthetic ester base stock which comprises the reaction product of; a branched or linear alcohol having the general formula R(OH)n. wherein R is an aliphatic or cyclo-aliphatic group having from about 2 to 20 carbon atoms and n is at least 2; and at least one branched oxo acid having a carbon number in the range between about C5 to C10, provided that said branched oxo acid does not include 2-ethylhexanoic acid; wherein the ester base stock exhibits the following properties: at least 60 % biodegradation in 28 days as measured by the Modified Sturm test; a pour point of less than -25 °C; and a viscosity of less than 7500 cps at -25 °C, about 1 to 20 % by weight lubricant additive package; and about 0 to 20 % of a solvent.



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11)特許出願公表番号 特表2000-514470 (P2000-514470A)

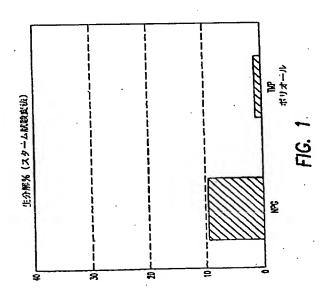
(43)公表日 平成12年10月31日(2000.10.31)

(51) Int.Cl.7	識別記号	FΙ	テーマコート* (参考)
C 1 0 M 105/38		C 1 0 M 105/38	•
# C10N 40:04		C09K 7/02	F
40: 08			
50: 10			
40: 26	審査請	求 未請求 予備審査請求	有 (全37頁) 最終頁に続く
	特顏平9-542690 平成9年5月21日(1997.5.21) 平成10年11月24日(1998.11.24) PCT/US 9 7 / 0 8 6 2 4 WO 9 7 / 4 4 4 1 6 平成9年11月27日(1997.11.27) 0 8 / 6 5 2, 0 1 2 平成8年5月21日(1996.5.21) 米国(US) EP(AT, BE, CH, DE, FR, GB, GR, IE, IT,	(71)出願人 エクソ アメリ 5200、 5200 (72)発明者 ダンス アメリ パトン ペニコ (74)代理人 弁理コ	ン・ケミカル・パテンツ・インク カ合衆国、テキサス州 77520— ペイタウン、ベイウェイ・ドライプ) ロン、キャロリン・ピー 日カ合衆国、ルイジアナ州 70817、 ハ・ルージュ、シャープスパーグ・ア ユー 17722 ヒ 山崎 行造 (外2名)
	T, SE), AU, BR, CA, (
N, JP, NO, P	L, SG		
		*	

(54) 【発明の名称】 分岐オキソ酸から作られた生分解性合成エステル・ペース・ストック

(57)【要約】

一般式:R(OH)。(ここで、Rは、約2~20の炭素原子を有する脂肪族又は環式脂肪族基であり、nは少なくとも2である)を有する分岐又は線状アルコールと、約C6~C10の範囲内の炭素数を有する少なくとも一つの分岐オキソ酸(但し、前記分岐オキソ酸は、2~エチルヘキサン酸を包含しない)との反応生成物を含む、少なくとも一つの生分解性合成エステル・ベース・ストックであって、前記エステル・ベース・ストックは、次の特性、即ち、スターム試験変法で測定して28日間に少なくとも60%の生分解、-25℃未満の流動点及び-25℃において7500cps未満の粘度を示すもの約60~99里量%、潤滑剤添加剤パッケージ約1~20里量%、及び溶剤約0~20%から調製される生分解性潤滑剤。



【特許請求の範囲】

1. 一般式:R (OH) $_n$ (ここで、R は、約2~20の炭素原子を有する 脂肪族又は環式脂肪族基であり、 $_n$ は少なくとも2である)を有する分岐又は線 状アルコールと、

約Cs~C1oの範囲内の炭素数を有する少なくとも一つの分岐オキソ酸 (但し、前記分岐オキソ酸は、2-エチルヘキサン酸を包含しない) との反応生成物を含む生分解性合成エステル・ペース・ストックであって、前記 エステル・ベース・ストックは、次の特性、即ち、スターム試験変法で測定して 28日間に少なくとも60%の生分解、-25℃朱満の流動点及び-25℃において7500cps未満の粘度を示す、生分解性合成エステル・ペース・ストック。

- 2. 前記分岐オキソ酸が次の工程から作られる、請求項1に係る生分解性合 成エステル・ペース・ストック:
- (a) C.~C。のオレフィン性供給材料を、ヒドロホルミル化触媒の存在下、アルデヒドが豊富な粗反応生成物の生成を促進する反応条件下において、一酸化炭素及び水素との反応により、ヒドロホルミル化し;
- (b) 前記のアルデヒドが豊富な粗反応生成物を脱金属し、それから前記ヒドロホルミル化触媒と実質的に触媒を含まず且つアルデヒドが豊富な粗反応生成物を回収し;
- (c) 前記の触媒を含まず且つアルデヒドが豊富な粗反応生成物を、 機縮されたアルデヒドが豊富な生成物とアルデヒドに乏しい生成物とに分け;
- (d) 前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を、(i)酸素又は(ii)酸形成触媒の存在下で且つ水素の不存在下に水と反応させ、それにより、前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を粗酸生成物に転化させ;及び
- (e) 前記の粗酸生成物を前記分岐オキソ酸と酸に乏しい生成物とに分ける。
- 3. 前記分岐オキソ酸が、3,5-ジメチルヘキサン酸、4,5-ジメチル ヘキサン酸、3,4-ジメチルヘキサン酸、5-メチルヘブタン酸、4-メチル

ヘプタン酸、及び混合メチルヘプタン酸類及びジメチルヘキサン酸類の混合物を含むイソオクタン酸である、請求項2に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。

- 4. 前記分岐オキソ酸が約C₁~C₁₀の範囲内の炭素数を有する、請求項1 に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。
- 5. 前記分岐オキソ酸が少なくとも三種の異性体を有する、請求項1に係る 生分解性合成エステル・ベース・ストック。
- 6. 前記エステルが、少なくとも175℃の高いCOC引火点をも示す、請求項1に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。
- 7. 前記分岐又は線状アルコールが、ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、エチレン又はプロピレングリコール、ブタンジオール、ソルビトール及び2ーメチルプロパンジオールからなる群から選択される、請求項1に係る生分解性合成エステル・ベース・ストック。
- 8. 前記分岐オキソ酸が、 β 炭素又はそれより高級の炭素に分岐を有して、一分子当たり約0.3~1.9の範囲内の平均分岐数を有する、請求項1に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。
- 9. 前記分岐オキソ酸が、イソペンタン酸、イソヘキサン酸、イソヘプタン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸及びイソデカン酸(但し、前記イソノナン酸は3,5,5-トリメチルヘキサン酸ではない)からなる群から選択される少なくとも一つの酸である、請求項1に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。
- 10. 前記生分解性合成エステル・ペース・ストックの形成のために使用される前記分岐オキン酸の10%以下が、四級炭素を含む、請求項1に係る生分解性合成エステル・ペース・ストック。
- 11. 一般式:R (OH) $_n$ (ここで、R は、約2~20の炭素原子を有する脂肪族又は環式脂肪族基であり、 $_n$ は少なくとも2である)を有する分岐又は線状アルコールと、約 $_n$ (n (n) の範囲内の炭素数を有する少なくとも一つの分岐オキソ酸 (但し、前記分岐オキソ酸は、n) との反応生成物を含む少なくとも一つの生分解性合成エステル・ベース・ストック

あって、前記エステル・ベース・ストックは、次の特性、即ち、スターム試験変法で測定して28日間に少なくとも60%の生分解、-25℃未満の流動点及び-25℃において7500cps未満の粘度を示すもの、及び潤滑剤添加剤パッケージから調製される生分解性潤滑剤。

- 12. 前記分岐オキソ酸が次の工程から作られる、請求項11に係る生分解性 潤滑剤:
- (a) C₄~C₅のオレフィン性供給材料を、ヒドロホルミル化触媒の存在下、アルデヒドが豊富な粗反応生成物の生成を促進する反応条件下において、一酸化炭素及び水素との反応により、ヒドロホルミル化し;
- (b) 前記のアルデヒドが豊富な粗反応生成物を脱金属し、それから 前記ヒドロホルミル化触媒と実質的に触媒を含まず且つアルデヒドが豊富な粗反 応生成物を回収し;
- (c) 前記の触媒を含まず且つアルテヒドが豊富な粗反応生成物を、 濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物とアルデヒドに乏しい生成物とに分け;
- (d) 前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を、(i)酸素又は(ii)酸形成触媒の存在下で旦つ水素の不存在下に水と反応させ、それにより、前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を粗酸生成物に転化させ;及び
- (e) 前記の粗酸生成物を前記分岐オキソ酸と酸に乏しい生成物とに分ける。
- 13. 前記分岐酸が、約C₇~C₁₀の範囲内の炭素数を有する、請求項11に 係る生分解性潤滑剤。
- 14. 前記分岐酸が少なくとも三種の異性体を有する、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 15. 前記エステル・ペース・ストックが、少なくとも175℃の高いCOC 引火点をも示す、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 16. 前記分岐又は線状アルコールが、ネオペンチルグリコール、トリメチル プロパン、エチレン又はプロピレングリコール、プタンジオール、ソルビトール

及び2-メチルプロパンジオールからなる群から選択される、請求項11に係る 生分解性潤滑剤。

- 17. 前記分岐オキソ酸が、β-炭素又はそれより高級の炭素に分岐を有して、一分子当たり約0.3~1.9の範囲内の平均分岐数を有する、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 18. 前記分岐オキソ酸が、イソペンタン酸、イソヘキサン酸、イソヘプタン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸及びイソデカン酸(但し、前記イソノナン酸は3,5,5ートリメチルヘキサン酸ではない)からなる群から選択される少なくとも一つの酸である、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 19. 前記生分解性潤滑剤が、前記分岐合成エステルと、菜種油及び他の合成エステルからなる群から選択される少なくとも一つのエステルとのプレンドである、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 20. 前記添加剤バッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 分散剤、潤滑油流れ改良剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤、消泡剤、耐磨耗 剤、シール膨潤剤及び摩擦改質剤からなる群から選択される複数の添加剤を含む 、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 21. 前記生分解性潤滑剤がキヤ油である、請求項11に係る生分解性潤滑剤
- 22. 前記生分解性潤滑剤が飛行機の発進装置油である、請求項11に係る生 分解性潤滑剤。
- 23. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 カップリング剤、分散剤、極圧剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤、消泡剤、耐 磨耗剤及び摩擦改質剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む 、請求項22に係る生分解性潤滑剤。
- 24. 前記生分解性潤滑剤が作動液である、請求項11に係る生分解性潤滑剤
- 25. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、境界潤滑剤、 抗乳化剤、流動点低下剤及び消泡剤からなる群から選択される少なくとも一つの

添加剤を含む、請求項24に係る生分解性潤滑剤。

- 26. 前記生分解性潤滑剤が掘削泥水である、請求項11に係る生分解性潤滑 剤。
- 27. 前記添加剤バッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、増量剤、水損失改良剤、殺菌剤及びドリルの穂先用潤滑剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、請求項26に係る生分解性潤滑剤。
- 28. 前記生分解性潤滑剤が水車油である、請求項11に係る生分解性潤滑剤
- 29. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 増粘剤、分散剤、抗乳化剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤及び流動点低下剤か らなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、請求項28に係る生分 解性潤滑剤。
- 30. 前記生分解性潤滑剤がグリースである、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 31. 前記添加剤パッケージが、増粘剤、粘度指数向上剤、酸化防止剤、極圧剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤、金属不活化剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、請求項30に係る生分解性潤滑剤
- 32. 前記生分解性潤滑剤が圧縮機油である、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 33. 前記添加剤パッケージが、酸化防止剤、清浄剤及び防錆剤、金属不活化剤、添加剤可溶化剤、抗乳化剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、請求項32に係る生分解性潤滑剤。
- 34. 前記生分解性合成エステル・ペース・ストックの形成のために使用される前記分岐酸の10%以下が、四級炭素を含む、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 35. 更に溶剤を含む、請求項11に係る生分解性潤滑剤。
- 36. 前記生分解性合成エステル・ペース・ストックが、約50~99重量%

の量で存在し、前記潤滑剤添加剤パッケージが、約1~20重量%の潤滑剤添加剤パッケージの量で存在し、且つ溶剤が約0~30%の量で存在する、請求項35に係る生分解性潤滑剤。

37. 前記生分解性潤滑剤が2サイクル・エンジン油である、請求項11に係

る生分解性潤滑剤。

38. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 カップリング剤、分散剤、極圧剤、色安定化剤、界面活性剤、稀釈剤、清浄剤及 び防錆剤、流動点低下剤、消泡剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少なく とも一つの添加剤を含む、請求項37に係る生分解性潤滑剤。

【発明の詳細な説明】

分岐オキソ酸から作られた生分解性合成エステル・ペース・ストック

本発明は、一般的に、生分解又は潤滑の低下なしに、生分解性潤滑剤ベース・ストックの常温流れ特性及び分散剤溶解性を改良するための、分岐合成エステルの使用に関する。少なくとも60%の生分解(スターム試験変法(Modified Sturm test)で測定した場合)が、ポリオール(例えば、トリメチロールプロパン(TMP)又はネオペンチルグリコール(NPG))を分岐オキソ酸(但し、2-エチルヘキサン酸はオキソ酸から除外される)でエステル化する手段により、達成され得る。これらの分岐合成エステルは、2サイクル・エンジン油、飛行機の発進装置油、作動液、掘削泥水、水車油、ギヤ油、グリース、圧縮機油、及び生分解性が必要とされている又は望まれている他の工業上の及びエンジンの用途における生分解性潤滑剤の製造において、特に有用である。

潤滑剤の川、海及び湖等の水路への分散をもたらす用途における使用のための 生分解性潤滑剤の開発における重要性は、環境団体及び潤滑剤製造者の両者によ り、実質的な重要性を生じていた。生分解及び潤滑の低下なしに、その常温流れ 特性及び付加的な溶解性を維持する潤滑剤の合成は、非常に望ましいであろう。

生分解性潤滑剤用途(例えば、2サイクル・エンジン油、飛行機の発進装置油、作動液、掘削泥水、水車油、ギヤ油、グリース及び圧縮機油)のためのペース・ストックは、一般的には、五つの基準、即ち(1)ポリアミド類等の分散剤及び他の添加剤の溶解性;(2)良好な常温流れ特性(例えば、-40℃末満の流動点;-25℃において7500cps未満);(3)処方が組まれた潤滑剤のための分散剤及び/又は他の添加剤の低い生分解性を埋め合わせるための、十分な生分解性;(4)摩耗用添加剤の助けなしでの良好な潤滑性;及び(5)高い引火点(ASTM試験番号D-92によって測定したときに、COC(クリーブランド・オープン・カップ)による引火及び燃焼点で175℃超)、に合致すべきである。

経済協力開発機構 (OECD) は、1979年12月に、分解及び蓄積試験の

ための試験ガイドライン草案を発行した。専門家グループは、有機化学物質の「

即座の(ready)生分解性」を決定するために、次の試験、即ち、OECDスクリーニング試験変法、MITI試験(I)の変法、クローズド・ボトル試験、スターム試験変法及びAFNOR試験変法、が使用されるべきであると推奨した。専門家グループは、また、上記の試験について、それぞれ、溶解された有機炭素(DOC)70%;生物学的酸素要求量(BOD)60%;総有機炭素(TOD)60%、(CO2)60%及び(DOC)70%が、「即座の生分解性」のよい証拠と評価されるとも推奨した。それゆえ、スターム試験変法を用いて28日以内に得られる生分解の「通過量(パス・レベル)」は、少なくとも60%(CO2)である。

スターム試験変法(OECD 301B、1981年5月12日採用、ここに援用される)の下での化学物質の「即座の生分解性」の試験のためのOECDガイドラインは、試験化合物の炭素含有量から計算された生成されるべき理論CO2(TCO2)の百分率として測定され且つ表される、試験化合物によって生成されたCO2の量の測定を含む。それゆえ、生分解性は、TCO2の百分率として表される。スターム試験変法は、本質的に他の有機炭素源を含まない化学的に規定された液状媒体に、試験物質を加え(spiking)、且つ下水微生物を接種することによって行われる。放出されたCO2は、BaCO2としてトラップされる。適切なブランク対照を考慮した後、試験化合物から生成されたCO2の総量が、試験期間の間測定され、且つ、試験物質が、炭素組成に基づいて理論上生成することができた総CO2の百分率として、計算される。ここに援用される、G・van der Waal及びD・Kenbeekの「環境にやさしいエステルに基づく流体の試験、応用及び将来の開発」、合成潤滑誌(Journal of Synthetic Lubrication)、第10巻、発行番号1、1993年4月、67~83頁を参照されたい。

今日使用されている一つのペース・ストックは、次の特性、即ち、40℃において47.8 c S t の粘度、0℃の流動点、162℃の引火点、及びスターム試験変法による85%の生分解性、を有している菜種油(即ち、脂肪酸類のトリグリセリド、例えば、7%飽和C12~C18酸、50%オレイン酸、36%リノール

酸及び7%リノレン酸)である。菜種油は、非常に良好な生分解性を有するけれ ども、生分解性潤滑剤用途におけるその使用は、その乏しい低温特性及び乏しい 安定性のために限られている。

線状の酸と線状のアルコールの両者から合成されたエステル類は、それらの分子量が十分に低い場合を除いて、乏しい低温特性を有している傾向がある。線状酸のポリオールエステル等の、線状酸と高度に分岐したアルコールから合成された場合でさえ、良好な低温特性を有する高粘度エステルは、それを達成するのが困難であり得る。加えて、線状酸のペンタエリトリトールエステルは、ポリアミド等の分散剤に対して乏しい溶解性を示し、そして、低分子量の(即ち、14未満の炭素数を有する)線状酸のトリメチロールプロパンエステルは、十分な潤滑性を提供しない。この潤滑性におけるより低い品質は、また、分岐アルコールのアジピン酸エステルにおいても見られる。低分子量線状エステルも低い粘度を有するから、ある程度の分岐は、良好な常温流れ特性を維持しつつ粘度を高めるために、必要とされる。従来の学問的知識では、高度に分岐している酸のポリオールエステルの場合のように、エステルのアルコール部分と酸部分の両者が高度に分岐しているとき、得られる分子は、スターム試験変法(OECD試験No.301B)によって測定したときに、乏しい生分解を示すであろうと信じられていた。

RandlesとWrightの一つの論文、即ち「自動車及び機械工業のための環境にやさしいエステル潤滑剤」、合成潤滑誌(Journal of Synthetic Lubrication)、第9-2卷、 $145\sim161$ 頁においては、微生物による分解を遅く又は低減する主たる特徴は、分岐の程度であり、分岐は β 一酸化を低減し、且つ、分岐の程度により、エステル加水分解か阻害されると記載された。炭素鎖に沿った分岐による生分解性への負の影響は、R. D. Swisherによる本、即ち、「界面活性剤の生分解」、マーセル・デッカー社(Marcel Dekker, Inc.)、第二版、1987年、 $415\sim417$ 頁において更に議論されている。彼の本において、Swisherは、「その結果は、分岐の程度が高められていることに伴う生分解に対する高められた抵抗性を明確に示した。...その他は線状の分子におけ

る一つのメチル分岐の影響は、かろうじて目立つだけであるけれども、分岐の程度が高められていることに伴う[生分解に対する]高められた抵抗性は、一般的に観察され、且つ、分子中のすべての鎖末端で四級分岐が生じているとき、抵抗は非常に大きくなる。」と記載した。生分解性に対するアルキル分岐の負の影響は、また、N. S. Battersby、S. E. Pack及びR. J. Watkinsonによる一つの論文、即ち、「CEC-L-33-T-82及びスターム試験変法における油製品の生分解性間の相関」、化学圏(Chemosphere)、24(12)、1989~2000頁(1992年)、においても議論されている。

当初、分岐ポリオールエステルの乏しい生分解は、分岐の影響であり、且つ、より重要でない程度において、その分子の水における不溶性の影響であると信じられていた。しかしながら、本発明者による最近の研究は、1994年12月8日に出願された、同時に係属しており且つ普通に譲渡された米国特許出願番号第351,990号(ここに援用される)に開示されているように、これらの分岐エステルの非生分解性は、微生物が三級及び四級炭素を分解できないことよりも、立体障害の作用の方がより大きいことを示している。従って、エステル結合付近の立体障害を緩和することにより、分岐エステルについて、生分解はより容易に生じ得る。

分岐合成ポリオールエステルは、冷却潤滑剤用途等の非生分解可能用途では、 広範囲に用いられており、且つ、仮に、3,5,5ートリメチルヘキサン酸が2 5モル%以上で分子に組み込まれるならば、非常に効果的であることが証明され ている。しかしなから、トリメチルヘキサン酸は、スターム試験変法(OECD 301B)で測定されたときに、生分解性ではなく、そして、3,5,5ート リメチルヘキサン酸の組み込みは、それに含まれている四級炭素のために、25 モル%でさえ、ポリオールエステルの生分解を劇的に低下させるであろう。

同様に、トリアルキル酢酸(即ち、ネオ酸)のポリオールエステルへの組み込みは、非常に有用な冷却潤滑剤を生ずる。これらの酸は、しかしながら、スターム試験変法(OECD 301B)で測定されたときに生分解せず、生分解可能

用途のためのポリオールエステルを製造するために使用され得ない。すべての分岐酸のポリオールエステルは、冷却油としても使用されてきている。しかしながら、スターム試験変法(OECD 301B)で測定されたときに、それらは急速には生分解せず、それゆえ、生分解可能な用途での使用には望ましくないと信じられていた。

冷却用途の、完全に線状のC,及びC10酸から作られたポリオールエステルは、スターム試験変法の下で生分解性であろうけれども、それらは、粘度が低すぎるであろうから、作動液又は2サイクル・エンジン用途では、潤滑剤として使用できないであろう。生分解性潤滑剤用途に要求される様々な特性、即ち、高粘度、低流動点、酸化安定性及びスターム試験変法で測定された生分解性、のすべてを示すことができる潤滑剤ベース・ストックを開発するのは、非常に困難である

1989年5月2日に発行された米国特許第4,826,633号(Carr 等) は、トリメチロールプロパンとモノペンタエリトリトールの少なくとも一つ を、脂肪族モノカルボン酸混合物と反応させることによって作られた、合成エス テル潤滑剤ベース・ストックを開示している。その酸の混合物は、5~10個の 炭素原子を有する直鎖の酸と、6~10個の炭素原子を有するイソ酸、好ましく はイソノナン酸 (即ち、3,5,5-トリメチルヘキサン酸)、とを含む。この ベース・ストックは、従来のエステル潤滑剤添加剤パッケージと混合され、99 ℃ (210°F) において少なくとも5. 0センチストークスの粘度及び少なく とも-54℃ (-65°F) という低さの流動点を有する潤滑剤を生じる。この 潤滑剤は、ガス・タービン・エンジンにおいて、特に有用である。Carr等の 特許は、二つの理由で本発明とは異なる。第一に、それは、その分岐酸として、 好ましくは、すべての酸分子中に四級炭素を含む3,5,5ートリメチルヘキサ ン酸を用いる。3,5,5ートリメチルヘキサン酸内における四級炭素の結合は 、ポリオールエステル生成物の生分解を阻害する。また、Carr等による潤滑 剤は、高圧示差走査熱量計(HPDSC)で測定したときに、高い安定性、即ち 、約35~65分、を示すので、微生物は、それらをバラバラにすることができ ない。

それゆえ、本発明者は、ポリオール(例えば、TMP又はNPG)と約5~

10、好ましくは7~10の範囲内の炭素数を有する分岐オキソ酸(但し、2~エチルヘキサン酸は、オキソ酸の群から除外される)からエステル・ベース・ストックを作ることにより、生分解性ベース・ストックを用いている、良好な常温流れ特性、分散剤との良好な溶解性、及び良好な潤滑性を有する高度に生分解性潤滑剤が、達成され得ることを発見した。本発明に従って用いられる分岐オキソ酸は、粘度を大きくするために必要とされ、これらの酸における多異性体は、低温特性を獲得するのに役立つ。即ち、分岐オキソ酸は、化学者に、分子量を高めることなく粘度を大きくすることを許す。更に、分岐した生分解性潤滑剤は、すべての線状の生分解性潤滑剤を超える、累加的な次の利点を提供する:(1)低下された流動点;(2)高められた他の添加剤の溶解性;及び(3)潤滑油の高められた清浄性/分散性。

本発明者によって収集され、後の実施例に示されたデータは、生分解性合成エステルが、TMP及びイソオキソオクタン酸(例えば、Cekanoic(登録商標)8)等のすべての分岐反応体から製造され得ることを示す。

それとは反対に、本発明者は、仮に、2-xチルヘキサン酸(2EH)のように、その酸が主にカルボニル炭素に対する α -炭素上で分岐しているならば、その場合は、酵素の攻撃に対する立体障害が大きくなりすぎることを発見した。従って、すべてではない分岐酸が、好ましい生分解性を有するポリオールエステルを生ずるであろう。

つまり、本発明は、オキソ法に由来する分岐酸を用いたポリオールのエステル化による、生分解性エステル・ベース・ストックの合成を包含する。オキソ法は、分岐酸であって、その分岐は鎖に沿っており、カルボニル炭素に対する α - 炭素上には殆ど分岐がないものの形成を促進する。オキソ酸の分岐は、エステル結合から離れているから、即ち、カルボニル炭素に対して β - 炭素又はそれ以上の炭素上にあるから、その結合の酵素解裂が生じ得る。

生分解性合成ペース・ストックは、好ましくは、一般式:R(OH)。(ここで、Rは、約2~20の炭素原子を有する脂肪族又は環式脂肪族基(好ましくは

アルキル) であり、nは少なくとも2で且つ約10までである)を有する分岐又は線状アルコールと、約 $C_{5}\sim C_{10}$ の、より好ましくは $C_{7}\sim C_{10}$ の範囲内の炭素

数 (即ち、炭素数は、場合場合で、酸又はアルコール中の炭素原子の総数を意味する)を有する分岐オキソ酸 (但し、オキソ酸は、意味ある量の、カルボニル炭素に対するαー炭素に分岐を有するオキソ酸異性体 (例えば2ーエチルヘキサン酸)を含まない) (ここで、生分解性合成エステル・ベース・ストックの形成のために使用される前記分岐酸の10%以下が、四級炭素を含む)との反応生成物を含み、ここにおいて、当該エステルは、次の特性、即ち、スターム試験変法で測定して28日間に少なくとも60%の生分解;−40℃未満の流動点;及び−25℃において7500cps未満の粘度、を示す。更に、当該エステル・ベース・ストックは、好ましくは、少なくとも175℃の高いCOC引火点を示す。最も好ましい態様においては、多異性体、好ましくは3を超える異性体、最も好ましくは5を超える異性体、を含む分岐酸を有することが望ましい。

分岐又は線状アルコールは、ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、エチレン又はプロピレングリコール、ブタンジオール、ソルビトール及び2ーメチルプロパンジオールからなる群から選択される。

分岐オキソ酸は、好ましくはカルボニル炭素に対してβー炭素又はそれより高級の炭素において、分岐を有して、一分子当たり約0.3~1.9の範囲内の平均分岐数を有する。分岐オキソ酸は、好ましくは、イソペンタン酸、イソヘキサン酸、イソヘプタン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸及びイソデカン酸(但し、イソノナン酸は、四級炭素の存在のために、3,5,5ートリメチルヘキサン酸ではない)からなる群から選択される少なくとも一つの酸である。

生分解性潤滑剤は、直上に開示された分岐合成エステルと、自然に見いだされる油 (例えば菜種油) 及び他の生分解性合成エステルからなる群から選択される 少なくとも一つのエステルとのプレンドであってもよい。

生分解性合成ベース・ストックは、2サイクル・エンジン油、生分解可能な飛 行機の発進装置油、生分解性作動液、生分解性掘削泥水、生分解性水車油、生分 解性グリース、生分解性圧縮機油、生分解性ギヤー油、機能性流体及び生分解性 が必要とされているか又は望まれている他の工業及びエンジン用途等の、生分解 性潤滑剤の処方において、特に有用である。

本発明に係る、処方が組まれた生分解性潤滑剤は、好ましくは、約60~99 重量%の上で論じた少なくとも一つの生分解性潤滑剤合成ペース・ストック、約1~20重量%の潤滑剤添加剤パッケージ、及び約0~20%の溶剤を含む。

図1は、ネオペンチルグリコールとトリメチロールプロパンに対して、生分解 百分率 (スターム試験変法) をプロットしているグラフである。

図2は、Cekanoic 8から作られた様々な合成ポリオールエステルに対して、生分解百分率 (スターム試験変法) をプロットしているグラフである。

図3は、分岐オキソCs酸と2-エチルヘキサン酸からそれぞれ作られた二つの合成ポリオールエステルが、環境に暴露される日数に対して、生分解百分率 (スターム試験変法)をプロットしているグラフである。

本発明に従う様々な生分解性潤滑剤及び油の処方中で使用される分岐合成エステル・ベース・ストックは、好ましくは、ポリオール・エステルと分岐Cs~C1。オキソ酸、例えばイソオキソオクタン酸(Cekanoic(登録商標)8)、との反応生成物から作られる。

本発明の分岐及び線状の酸と反応され得るアルコール類の中で、例として、一般式:R (OH) n [ここで、R は脂肪族又は環式脂肪族炭化水素基 (好ましくはアルキル) であり、n は少なくとも2である。] で表されるポリオール (即ち、ポリヒドロキシル化合物) が挙げられる。炭化水素基は、約2~約20あるいはそれを超える炭素原子を含むことができ、且つ、炭化水素基は、塩素、窒素及び/又は酸素原子等の置換原子を含むこともできる。ポリヒドロキシル化合物は、一般に、約2~約10の水酸基を含み、より好ましくは、約2~約6の水酸基を含むであろう。ポリヒドロキシル化合物は、一つ以上のオキシアルキレン基を含むであろう。ポリヒドロキシル化合物は、ポリエーテルポリオール等の化合物を包含する。カルボン酸エステルを作るために用いるポリヒドロキシル化合物に含まれる炭素原子の数(即ち、炭素数)及び水酸基の数(即ち、水酸基数)は、広範囲に亘って多様であり得る。

次のアルコール類は、ポリオールとして特に有用である:ネオペンチルグリコール、2,2-ジメチロールブタン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、トリメチロールプタン、エチレングリコール、プロピレングリコール

及びポリアルキレングリコール類(例えば、ポリエチレングリコール類、ポリプロピレングリコール類、ポリブチレングリコール類等、及びエチレングリコールとプロピレングリコールが重合された混合物等のその混合物類)。

好ましい分岐又は線状アルコールは、ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、トリメチロールエタン、及びプロピレングリコール、1,4ープタンジオール、ソルビトール等、及び2ーメチルプロパンジオールからなる群から選択される。最も好ましいアルコールは、トリメチロールプロパン及びネオペンチルグリコールである。

分岐オキソ酸

分岐オキソ酸は、好ましくは、約Cs~C1o、好ましくはCs~Cr、の範囲内の炭素数を有するモノカルボキシオキソ酸であり、ここにおいて、複数のメチル分岐が好ましい。好ましい分岐オキソ酸は、分岐酸の10%以下が四級炭素を含むものである。モノカルボキシオキソ酸は、イソペンタン酸、イソヘキサン酸、イソヘブタン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸及びイソデカン酸からなる群から選択される少なくとも一つの酸である。但し、2-エチルヘキサン酸(2EH)等の、主にカルボニル炭素に対するαー炭素が分岐しているオキソ酸は、本発明の分岐オキソ酸から明確に除外される。最も好ましい分岐酸は、イソオキソオクタン酸、例えばCekanoic8酸、である。2-エチルヘキサン酸は、イソC。酸であり、時折オキソ酸として引用されるけれども、この酸は、ヒドロホルミル化反応とその後のアルドール反応を含む二段階プロセスを通じて作られ、それゆえ、本発明で定義されるところの「オキソ酸」を構成しない。

ここでいう「 ∞ -炭素」は、カルボニル炭素に最も近い、炭素鎖に沿った炭素原子を意味する。つまり、 β -炭素は、 ∞ -炭素の隣りの炭素であり、より高級の炭素は、 β -炭素についており且つそれより高級の炭素である。

「イソ」という用語は、オキソ法によって作られた多異性体生成物を知らせる

ことが意味されている。イソノナン酸は、当業者により、普通は3,5,5-トリメチルヘキサン酸であると考えられているけれども、この場合には、それは、イソオクテンのオキソ処理によって作られる多異性体生成物を表し、特に、3,5-トリメチルヘキサン酸を除外することになろう。

多異性体、好ましくは3を超える異性体、最も好ましくは5を超える異性体を 含む分岐オキソ酸を有するのが望ましい。

分岐オキソ酸は、いわゆる「オキソ」法で、市販の分岐C₄~C₉オレフィン画 分の対応する分岐C₅~C₁₀アルデヒド含有オキソ化生成物へのヒドロホルミル 化により、製造され得る。オキソ酸の製造方法においては、オキソ化生成物から アルデヒド中間体を作り、その後に粗オキソアルデヒド生成物のオキソ酸への転 化を行うのが望ましい。オキソ酸は、本発明に係る生分解性分岐ポリオールエス テルの製造のための鍵となる反応体である。

オキソ酸を工業的に製造するために、ヒドロホルミル化法が、オキソアルデヒドの生成を最大化するために適合させられる。これは、温度、圧力、触媒濃度及び/又は反応時間を制御することによって成し遂げられ得る。その後、脱金属された粗アルデヒド生成物が蒸留され、オキソアルデヒドからオキソアルコールが除去され、そのオキソアルデヒドは、その後、下記反応に従って酸化されて所望のオキソ酸を生ずる:

替わりに、オキソ酸は、酸形成触媒の存在下において且つ水素の不存在下において、約93~205℃の範囲内の温度で、そして約0.1~6.99MPaの圧力で、脱金属された粗アルデヒド生成物を水と反応させ、それにより、濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を粗酸生成物に転化し、その粗酸生成物を酸が豊富な生成物と酸に乏しい生成物とに分離することにより、作られ得る。

オレフィン性供給材料の、コバルトの触媒作用を受けたヒドロホルミル化による分岐オキソ酸の製造は、好ましくは次の工程を含む:

(a) オレフィン性供給材料を、ヒドロホルミル化触媒の存在下、アルデヒ

ドが豊富な粗反応生成物の生成を促進する反応条件下に、一酸化炭素及び水素 (即ち、合成ガス) との反応により、ヒドロホルミル化し;

- (b) そのアルデヒドが豊富な粗反応生成物を脱金属し、それからヒドロホルミル化触媒と実質的に触媒を含まずアルデヒドが豊富な粗反応生成物を回収し
- (c) その触媒を含まずアルデヒドが豊富な粗反応生成物を、濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物とアルデヒドに乏しい生成物とに分け;
- (d) その濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を、(i)酸素(任意に触媒と共に)又は(ii)酸形成触媒の存在下で且つ水素の不存在下で水と反応させ、それにより、濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を粗酸生成物に転化させ;及び
 - (e) その粗酸生成物を分岐オキソ酸と酸に乏しい生成物とに分ける。

オレフィン性供給材料は、好ましくはC・~C・オレフィンであり、より好ましくは分岐C・オレフィンである。更に、オレフィン性供給材料は、すべて分岐したオキソ酸を製造できる線状オレフィンも、ここにおいて意図されているけれども、好ましくは分岐オレフィンである。ヒドロホルミル化、及びその後の粗ヒドロホルミル化生成物の(i)酸素(例えば空気)、又は(i i)酸形成触媒の存在下での水との反応は、分岐C・~C・酸、より好ましくは分岐C・酸(即ち、Cekanoic 8 酸)、の製造を可能にする。分岐オキソアルデヒドの転化によって作られた分岐オキソC・~C・酸のそれぞれは、一般的には、例えば、分岐オキソ酸異性体の混合物を含む。例えば、Cekanoic 8 酸は、26重量%の3,5ージメチルへキサン酸、19重量%の4,5ージメチルへキサン酸、17重量%の3,4ージメチルへキサン酸、11重量%の5ーメチルへプタン酸、5重量%の4ーメチルへプタン酸及び22重量%の混合メチルへプタン酸類/ジメチルへキサン酸類の混合物を含む。

オキソアルテヒドをオキソ酸に転化できる、当業者に公知の触媒のいずれの種類も、本発明によって意図されている。好ましい酸形成触媒は、1994年6月30日に出願された、同時に係属しており且つ普通に譲渡された米国特許出願番

号第269,420号 (Vargas等) (ここに援用される) に開示されている。仮に、酸形成触媒が担持金属又は二金属 (bimetallic) 触媒であるならば、好ましい。一つのそのような触媒は、アルミナ又はシリカアルミナに担持された二金属ニッケルーモリブデン触媒であり、その触媒は、触媒の総重量に基づいて、約0.1重量%~1.0重量%のリン含有量を有する。他の触媒は、アルミナ担体に含浸されるモリブデン塩の溶剤としてリン酸を用いて調製さ

れ得る。更に他の二金属性でリンを含まないNi/Mo触媒が、オキソアルデヒドをオキソ酸に転化するために使用され得る。

分岐合成エステル・ペース・ストックは、生分解性潤滑剤の処方中において、 選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。以下に示す添加剤は、一般的には 、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。個々の成分の一般的 な量もまた、以下に示されている。好ましい生分解性潤滑剤は、およそ80重量 %又はそれを超えるペース・ストックと、20重量%の次の添加剤のいずれかの 組み合わせを含む:

	(広い)	(好ましい)
	重量%	重量%
粘度指数向上剤	1 - 1 2	1-4
腐食防止剤	0.01-3	0.01-1.5
酸化防止剤	0.01-5	0.01-1.5
分散剤	0.1-10	0.1-5
潤滑油流れ改良剤	0.01-2	0.01-1.5
清浄剤及び防錆剤	0.01-6	0.01-3
流動点低下剤	0.01-1.5	0.01-1.5
消泡剤	0.001-0.1	0.001-0.01
耐磨耗剤	0.001-5	0.001-1.5
シール膨潤剤	0.1-8	0.1-4
摩擦改質剤	0.01-3	0.01-1.5
生分解性合成エステル・		
ペース・ストック	≥80%	≥80%

他の複数の添加剤が使用されるとき、分散剤(これより上で説明した濃縮された量で)と他の添加剤の一種以上(ここにおいて添加剤パッケージとして表されている添加剤混合物を構成しているときには濃縮物)との濃縮溶液又は分散液を含む、添加剤濃縮物を調製することが、必要ではないが、望ましいかもしれない。その場合は、潤滑油組成物を作るために、数種の添加剤が、同時にベース・

ストックに添加され得る。添加剤濃縮物の潤滑油への溶解は、溶剤により、そして穏やかな加熱を伴う混合により、促進され得る。しかし、これは、必須ではない。濃縮物又は添加剤パッケージは、一般的には、添加剤パッケージが前もって決められた量のペース潤滑剤又はペース・ストックと組み合わされるときに、最終的な処方中で所望の濃度を提供するために、分散剤添加剤及び任意の付加的添加剤を適切な量で含むように処方が組まれるであろう。従って、本発明の生分解性潤滑剤は、一般的には、約20重量%までの添加剤パッケージを用いることができ、残りは生分解性エステル・ペース・ストック及び/又は溶剤である。

ここで示されている重量百分率のすべて (特記されていない限り) は、添加剤の活性成分 (A. I.) 含有量、及び/又は、各添加剤の活性成分重量の合計+油又は稀釈剤の総重量である添加剤パッケージ又は処方の総重量に基づく。

生分解性潤滑剤における使用のための上記添加剤の例は、ここに援用される次の文書に記載されている:1994年4月26日に発行された米国特許第5,306,313号(Emert等);1994年5月17日に発行された米国特許第5,312,554号(Waddoups等);1994年7月12日に発行された米国特許第5,328,624号(Chung);Benfaremo及びLiuによる論文である「クランク室エンジン油添加剤」、潤滑(Lubrication)、テキサコ社(Texaco Inc.)、1~7頁;及びListonによる論文である「エンジン潤滑剤添加剤 それらは何でありどのように機能するのか」、潤滑工学(Lubrication Engineering)、1992年5月、389~397頁。

粘度調整剤は、潤滑油に高温及び低温における使用可能性を付与し、そして、 潤滑油を、高温においてせん断に対して安定なままとさせ、且つ又、低温におい て好ましい粘度又は流動性を示すようにもさせる。これらの粘度調整剤は、一般には、ポリエステルを包含して、高分子量の炭化水素ポリマーである。粘度調整剤は、分散剤の性質の付加のように、他の性質又は機能を含むように誘導されることもできる。 適切な粘度調整剤の代表例は、ポリイソプチレン、エチレンとプロピレンのコポリマー、ポリメタクリレート、メタクリレートコポリマー、不飽和ジカルボン酸とビニル化合物のコポリマー、スチレンとアクリル酸エステルの

インターポリマー、及びスチレン/イソプレン、スチレン/ブタジエン及びイソ プレン/ブタジエンの部分水素化コポリマーと、ブタジエン及びイソプレンの部 分水素化ホモポリマーを包含して、当分野で公知の種類の幾つかである。

耐食剤としても知られている腐食防止剤は、潤滑油組成物と接触する金属部品の劣化を低減する。腐食防止剤の実例は、リン化硫化炭化水素、及び、好ましくはアルキル化フェノール又はアルキルフェノールチオエステルの存在下で、そして同じく好ましくはアルキル化フェノール又はアルキルフェノールチオエステルの存在下で、そして同じく好ましくは二酸化炭素の存在下で、リン化硫化炭化水素とアルカリ土類金属酸化物又は水酸化物との反応で得られる生成物である。リン化硫化炭化水素は、テルペン、ポリインブチレン等のC2~C6オレフィンポリマーの重石油画分等の適切な炭化水素を、5~30重量%のリン硫化物と、1/2~15時間、約66~316℃の範囲内の温度で反応させることにより、調製される。リン化硫化炭化水素の中和は、米国特許第1,969,324号に教示された方法で行われ得る。

酸化防止剤、又は抗酸化剤、は、鉱油が使用時に劣化する傾向を低減する。その劣化は、金属表面上におけるスラッジ及びワニス様沈殿物等の酸化生成物によって、及び粘度の増加によって明示され得る。そのような酸化防止剤は、好ましくはC。へC12アルキル側鎖を有するアルキルフェノールチオエステルのアルカリ土類金属塩、例えば、カルシウム ノニルフェノールスルフィド、バリウムオクチルフェニルスルフィド、ジオクチルフェニルアミン、フェニルαーナフチルアミン、リン化硫化又は硫化炭化水素等を包含する。

摩擦改質剤は、自動変速機液等の潤滑油組成物に、適切な摩擦特性を付与する

のに役立つ。適切な摩擦改質剤の代表例は、脂肪酸エステル及びアミド、ポリイソプテニルコハク酸無水物ーアミノアルカノールのモリブデン錯体、二量化された脂肪酸のグリセロールエステル、アルカンホスホン酸塩、オレアミドを有するホスホン酸エステル又は塩、Sーカルポキシアルキレンヒドロカルビルコハク酸イミド、N(ヒドロキシルアルキル)アルケニルスクシナミン酸又はコハク酸イミド、亜リン酸ジ(低級アルキル)及びジ(低級アルキル)エポキシド、及びリン化硫化Nー(ヒドロキシアルキル)アルケニルコハク酸イミドのアルキレンオ

キシド付加体及びである。最も好ましい摩擦改質剤は、ヒドロカルビル置換コハク酸又はその無水物と、チオビス (アルカノール) とのコハク酸エステル又はその金属塩である。

分散剤は、使用の間に酸化の結果として生じる油不溶物を、流体中において懸濁の状態に維持し、それにより、金属部品上へのスラッジのフロキュレーション及び沈殿又は堆積を防ぐ。適切な分散剤は、高分子量のアルキルコハク酸イミド、油溶性ポリインブチレンコハク酸無水物とテトラエチレンペンタミン及びその硼酸塩等のエチレンアミンとの反応生成物を包含する。

流動点低下剤は、むしろ潤滑油流動性改良剤として知られているが、流体が流動し、注がれ得るであろう温度を低下させる。そのような添加剤は、よく知られている。通常、流体の低温流動性を最適化するそれらの添加剤の典型は、フマル酸Cs~C1sジアルキル/酢酸ビニルコポリマー、ポリメタクリル酸エステル又は塩、及びロウ(wax)ナフタレンである。ポリシロキサン型、例えばシリコーン油及びポリジメチルシロキサン、の消泡剤により、泡の制御が提供される。

耐磨耗剤は、それらの名前が暗示しているように、金属部品の磨耗を低減させる。従来の耐磨耗剤の代表例は、ジチオリン酸ジアルキル亜鉛及びジチオリン酸ジアリール亜鉛である。

消泡剤は、潤滑剤中において、泡を制御するために使用される。泡の制御は、 高分子量のジメチルシロキサン及びポリエーテルの消泡剤によって提供され得る 。ポリシロキサン型の消泡剤の幾つかの例は、シリコーン油及びポリジメチルシ ロキサンである。 清浄剤及び金属防錆剤は、スルホン酸金属塩、アルキルフェノール、硫化アルキルフェノール、サリチル酸アルキル、ナフテン酸エステル又は塩、及び他の油溶性モノー又はジカルボン酸を包含する。非常に塩基性のスルホン酸アルカリ土類金属塩(特にCa塩とMg塩)等の非常に塩基性の(即ち、過塩基性の)金属塩は、しばしば、清浄剤としても用いられる。

シール膨潤剤は、トリデシルアルコール等の8~13炭素原子の脂肪族アルコールを含めて、エンジン・シールの膨潤を引き起こす種類の鉱油を包含する。好ましいシール膨潤剤は、ここに援用される、米国特許第3,974,081号

に記載されているように、例えばフタル酸ジヘキシルといった、油溶性で、飽和されており、炭素原子が10~60個でエステル結合が2~4個の脂肪族又は芳香族炭化水素エステルとして特徴付けられている。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性2サイクル・エンジン油の処方において、選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解性2サイクル・エンジン油は、一般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを従来の2サイクル・エンジン油添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、カップリング剤、分散剤、極圧剤、色安定化剤、界面活性剤、稀釈剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤、消泡剤及び耐磨耗剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性2サイクル・エンジン油は、一般的には、約75~85%のペース・ストックと約1~5%の溶剤を用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。

生分解性潤滑剤における使用のための上記添加剤の例は、ここに援用される次の文書に記載されている:1987年5月5日に発行された米国特許第5,663,063号(Davis);1994年7月19日に発行された米国特許第5,330,667号(Tiffany,III等);1988年4月26日に発行された米国特許第4,740,321号(Davis等);1994年6月1

4日に発行された米国特許第5, 321, 172号 (Alexander等);及び1991年9月17日に発行された米国特許第5, 049, 291号 (Miyaji等)。

飛行機の発進装置は、飛行機を空母から発射するために、海において、空母上で使用される器械である。分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解可能な飛行機の発進装置油の処方において、選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解可能な飛行機の発進装置油は、一般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを従来の飛行機の発進装置油添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般

的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、極圧剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤、消泡剤、耐磨耗剤及び摩擦改質剤を含むことができる。

本発明に係る生分解可能な飛行機の発進装置油は、一般的には、約90~99 %のペース・ストックを用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。

生分解可能な飛行機の発進装置油は、好ましくは、従来の腐食防止剤と防錆剤とを含む。所望により、飛行機の発進装置油は、消泡剤、耐磨耗剤、他の酸化防止剤、極圧剤、摩擦改質剤及び他の加水分解安定化剤等の他の従来の添加剤を含有することができる。これらの添加剤は、ここに援用される、Klamannの「潤滑剤及び関連する製品」、化学出版物(Verlag Chemie)、ディアフィールドビーチ、フロリダ州、1984年に開示されている。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性作動液の処方において、選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解性作動液は、一般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを従来の作動液添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、境界潤滑剤、抗乳化剤、流動点低下剤及び消泡剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性作動液は、一般的には、約90~99%のペース・ストックを用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。

他の添加剤は、ここに援用される、1988年11月8日に発行された米国特許第4,783,274号(Jokinen等)に開示されている。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性掘削泥水の処方において、 選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解性掘削泥水は、一般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを 従来の掘削泥水添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加 剤は、一般的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、粘度指数向上剤、腐食防止

剤、湿潤剤、水損失改良剤、殺菌剤及びドリルの穂先用潤滑剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性掘削泥水は、一般的には、約60~90%のベース・ストック及び約5~25%の溶剤を用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。ここに援用される、1983年5月3日に発行された米国特許第4,382,002号(Walker等)を参照されたい。

適切な炭化水素溶剤は、鉱油、特に、テキサス州ヒューストンのエクソン・ケミカル・アメリカズによって販売されているMentor28 (登録商標)等の、200~400℃の沸点範囲を有する酸化安定性が良好なパラフィンを基本とする油;ジーゼル及びガス油;及び重質芳香族ナフサを包含する。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性水車油の処方において、選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解性水車油は、一般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを従来の水車油添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、増粘剤、分散剤、抗乳化剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤及び流動点低下剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性水車油は、一般的には、約65~75%のベース・ストック及び約5~30%の溶剤を用いることができ、残りは、添加剤パッケージを、一般的には、組成物の総重量に基づいて、それぞれの添加剤が約0.01~約5.0重量%の範囲内で含む。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性グリースの処方において、 選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。グリース中に見られる主成分は、 増粘剤又はゲル化剤であり、グリースの処方における相違は、しばしばこの成分 を含む。増粘剤又はゲル化剤の他に、グリースの他の性質及び特徴は、特定の潤 滑ベース・ストック及び使用され得る様々な添加剤により、影響され得る。

好ましい生分解性グリースは、一般的には、本発明に従って作られた生分解性 合成エステル・ペース・ストックを従来のグリース添加剤パッケージと共に用い

て、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般的には、それらが通常有する機能 を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしな いが、粘度指数向上剤、酸化防止剤、極圧剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤 、金属不活化剤、耐磨耗剤、及び増粘剤又はゲル化剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性グリースは、一般的には、約80~95%のベース・ストック及び約5~20%の増粘剤又はゲル化剤を用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。

グリースの処方で用いられる一般的な増粘剤は、アルカリ金属石鹸、クレー、ポリマー、アスペスト、カーボン・ブラック、シリカゲル、ポリウレア及びアルミニウム錯体を包含する。石鹸で増粘されたグリースは、最も評判がよく、リチウム及びカルシウム石鹸が、最も一般的である。単純な石鹸グリースは、長鎖脂肪酸のアルカリ金属塩と1,2ーヒドロキシステアリン酸リチウムから作られ、有力なものは、1,2ーヒドロキシステアリン酸、水酸化リチウムー水和物及び鉱油から作られるものである。複合石鹸グリースも、一般的によく使われており、且つ、有機酸の混合物の金属塩を含む。今日使用されている一つの一般的な複合石鹸グリースは、1,2ーヒドロキシステアリン酸、水酸化リチウムー水和物、アゼライン酸及び鉱油から作られた複合リチウム石鹸グリースである。リチウ

ム石鹸は、1983年7月12日に発行された米国特許第4,392,967号 (Alexander) と共に、すべてがここに援用される、1973年9月11日に発行された米国特許第3,758,407号 (Harting);1974年2月12日に発行された米国特許第3,791,973号 (Gilani);及び1975年12月30日に発行された米国特許第3,929,651号 (Murray)を含む、多くの特許中に記載され且つ例示されている。

グリースにおいて使用される添加剤の記述は、ここに援用される、Bonerの「現在の潤滑グリース」、1976年、5章にも、他の生分解性製品における上記した添加剤にも見られ得る。

分岐合成エステル・ベース・ストックは、生分解性圧縮機油の処方において、 選択された潤滑剤添加剤と共に使用され得る。好ましい生分解性圧縮機油は、一 般的には、本発明に従って作られた生分解性合成エステル・ベース・ストックを

従来の圧縮機油添加剤パッケージと共に用いて、処方が組まれる。下記する添加剤は、一般的には、それらが通常有する機能を供するような量で使用される。添加剤パッケージは、それらに限定されはしないが、酸化防止剤、添加剤可溶化剤、防錆剤/金属不動態化剤、抗乳化剤及び耐磨耗剤を含むことができる。

本発明に係る生分解性圧縮機油は、一般的には、約80~99%のペース・ストック及び約1~15%の溶剤を用いることができ、残りは添加剤パッケージを含む。

圧縮機油用の添加剤もまた、1992年10月20日に発行され、ここに援用される、米国特許第5156759号 (Culpon, Jr.) に示されている

実施例1

次のものは、生分解性潤滑剤としての使用に満足な特性を示さない、従来のエステル・ベース・ストックである。表1に挙げた性質は、次のようにして測定された。流動点は、ASTM#D-97を用いて測定された。-25 でにおけるブルックフィールド粘度は、ASTM#D-2983 を用いて測定された。動粘度 (40 ℃及び100 ℃にて) は、ASTM#D-445 を用いて測定された。生

分解は、スターム試験変法(OECD試験No.301B)を用いて測定された。分散剤の溶解性は、所望の比率でプレンドし、且つ、曇り(ヘイズ)、曇り(クラウディネス)、二相等を探すことによって決定された。エンジンの摩耗は、NMMAヤマハCE50S潤滑性試験を用いて決定された。

		表_	1				
	流動点	粘度	粘度	粘度	生分解	分散剤	エンジ
		-25 ℃	40°C	100°C	*	の溶解	ンの摩
ベース・ストック	•c	(cPs)	(cSt)	(cSt)	%	性*	
天然油			•				
菜種油	0	固体	47.80	10.19	86.7	n/a	n/a
すべて線状のエステル		•			•		
アジビン酸ジ (ウンデシル)	+21	固体	13.92	2.80	n/a	n/a	n/a
ポリオールと							
線状又は半線状の酸							
TPE/C810/C7酸	n/a	固体	29.98	5.90	n/a	n/a	n/a
TPE/DiPE/n-C7	-45	1380	24.70	5.12	82.31	н	落第
TPE/C7酸	-62	915	24.0	4.9	83.7	Н	落第
TMP/n-C7, 8, 10	-85	350	17.27	4.05	61.7**	C	落第
TMP/C7酸	-71	378	14.1	3.4	76.5	C	落第
<u>分岐アジビン酸エステル</u>						•	
<u>アジピン酸ジ(トリデシル)</u>	-62_	n/a	26.93	5.33	65.99	с	落第

^{*}は、分散剤の溶解性を示す:H=曇り;C=透明。

TPEは、工業銘柄のペンタエリトリトールを示す。

TMPは、トリメチロールプロパンを示す。

C810は、主に、 $n-オクタン酸と n-デカン酸との混合物を示し、それは少量の<math>n-C_6$ 酸及び $n-C_{12}$ 酸を含むことができる。C810酸の典型的な試料は、例えば、 $3\sim5\%$ の $n-C_6$ 、 $48\sim58\%$ の $n-C_8$ 、3

[&]quot;は、分散剤を15.5重量%含むこの物質の生分解を示す。

n/aは、情報が得られなかったことを示す。

6~42%のn-C10及び0.5~1%のn-C12を含むことができる

n-C7, 8, 10は、7炭素原子、8炭素原子及び10炭素原子の線状の酸の ブレンド、例えば、37モル%のn-C1酸、39モル%のC8酸、21

モル%のС10酸及び3モル%のС6酸のプレンドを示す。

C,は、ヘキセン-1のコバルトの触媒作用を受けたオキソ反応によって製造されたC,酸であって、70%は線状で30%はα-分岐のものを示す。その組成は、およそ70%のn-ヘプタン酸、22%の2-メチルヘキサン酸、6.5%の2-エチルペンタン酸、1%の4-メチルヘキサン酸及び0.5%の3,3-ジメチルペンタン酸を包含する。

菜種油(天然物)は、非常に生分解性が高いが、しかし、非常に乏しい低温特性を有し、その不安定さのために、それ程潤滑剤として働かない。菜種油は、非常に不安定であり、沈殿物の生成、スラッジ及び腐食の問題を生じてエンジン中で分解する。アジピン酸ジ(ウンデシル)もまた、おそらく生分解可能であるけれども、非常に乏しい低温特性を有する。低分子量の線状酸のポリオールエステルは、潤滑性を供しない。そして、高分子量の線状又は半線状酸のポリオールエステルは、乏しい低温特性を有する。加えて、線状酸のペンタエリトリトールエステルは、ポリアミド分散剤に対して溶解性ではない。アジピン酸ジ(トリデシル)は、不十分に生分解性であるのみであり、低い生分解性を有する分散剤とブレンドしたときには、処方が組まれた油は、約45%生分解性であるのみである。加えて、アジピン酸ジ(トリデシル)は、潤滑性を供しない。アジピン酸ジ(イソデシル)等のより低分子量の分岐アジピン酸エステルは、より生分解性であるけれども、それらもまた、潤滑性を供せず、且つ、シール膨潤の問題を引き起こし得る。

実施例2

本発明者は、比較実験を行い、ネオペンチルグリコール及びトリメチロールプロパンについて、スターム試験変法の下での生分解性を測定した。その結果は、これに添付された図1に示されている。それにおいては、ネオペンチルグリコー

ルもトリメチロールプロバンも、何ら十分な程度の生分解性を示さなかった。 実施例 3

本発明者は、スターム試験変法を用い、二つの分岐合成ポリオールエステル、 即ち、ネオペンチルグリコールと分岐オキソC。酸とのエステル(NPG/iー C8)とトリメチロールプロパンと分岐オキソC。酸とのエステル(TMP/i

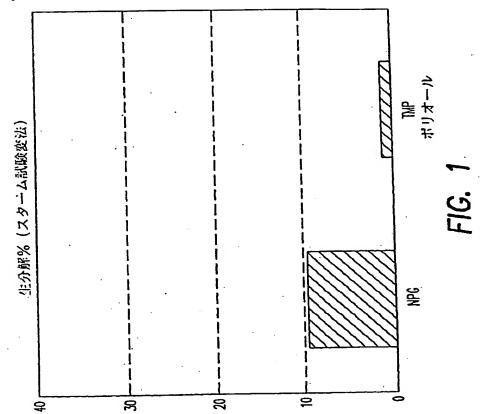
C8)、の生分解性百分率(%)を測定した。NGPとTMPを分岐オキソC。酸でエステル化することによって形成されたエステルは、スターム試験変法の下で、生分解性を示した(即ち、28日間で60%を超えて生分解可能)。

NGPとTMPは、それら自体、殆ど又はまったく生分解性を示さなかったにもかかわらす、NGPとTMPが、分岐オキソC。酸でエステル化されたときに、スターム試験変法の下で生分解可能であることをはっきりと示すかもしれないということは、あまり期待されていない。

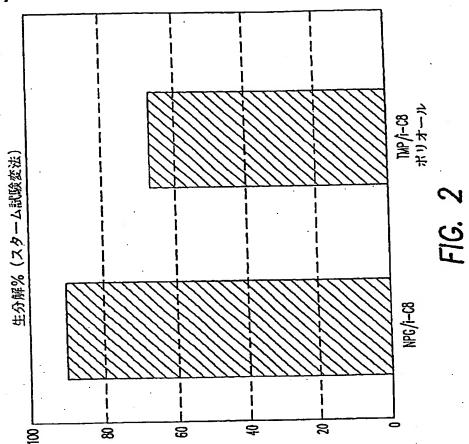
実施例4

本発明者は、また、実験を行った。そのデータは、これに添付された図3に示されている。それにおいては、スターム試験変法で測定したときに、 $2-x+\nu$ へキサン酸(即ち、イソ C_{\circ} 酸)と反応されたトリメチロールプロバンのx ステルの最終的な生分解は5%であり、一方、分岐オキソ C_{\circ} 酸(即ち、x Cekan x Oical be produced and x Cekan oical be produce

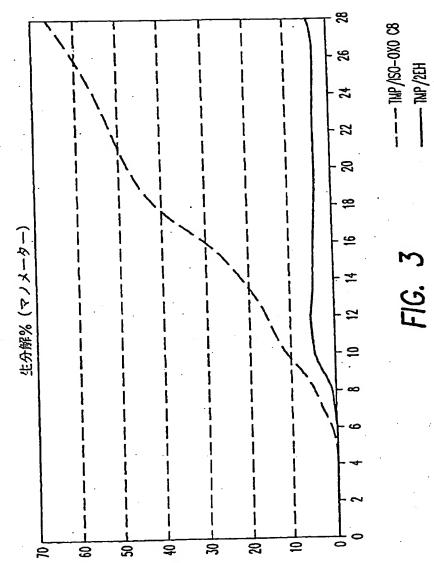












【国際調査報告】

Interna val application No. INTERNATIONAL SEARCH REPORT PCT/US 97/08624 A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC6: C10M 105/38 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC6: C10M, CO7C Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data bare consulted during the international search (name of data bare and, where practicable, search terms used) WPI C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Relevant to claim No. Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Category * 1,7,9-11, WO 9617910 A1 (EXXON CHEMICAL PATENTS INC.), P,X 16-17,22-38 13 June 1996 (13.06.96), claims 1,4,6-7,11-12, 15-30 1.3-4.6-10 EP 0536814 A1 (KYODO OIL TECHNICAL RESEARCH CENTER X CO., LTD.), 14 April 1993 (14.04.93), page 6, examples A-1, A-6; page 13, example A-25 1,10-11, EP 0430657 A1 (ASAHI DENKA KOGYO KABUSHIKI KAISHA), X 16-17,23, 5 June 1991 (05.06.91), page 4, example 1 32-33 X See patent family annex. Further documents are listed in the continuation of Box C. later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of paractular relevance ٠٨, "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventwe step when the document is taken alone. eries socument but published on or after the international filing date document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to exabilish the publication date of another charlon or other special reason (as specified) document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to invelve an inventive step when the document is combined with one or name other such documents, such combination when the approximation obvious to a person shilled in the art document referring to an oral discioners, use, exhibition or other document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of mailing of the international search report Date of the actual completion of the international search 10, 10, 97 5 Sept 1997 Authorized officer Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.R. 5818 Patentiaan 2 N1-2280 HV Ripwift Tcl. (+ 31-70) 340-2040, Tz. 31 651 epo dl. Fax: (+ 31-70) 140-3016 DAGNAR JÄRVHAN Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

International application No.
PCT/US 97/08624

C (Continu	ation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category*	Gustion of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Redevant to claim No.
X	WO 9311210A1 (EXXON CHEMICAL PATENTS INC.), 10 June 1993 (10.06.93), page 16, example D, page 17, example H	1,4,7-8, 10-11,13-17, 20,32-34
x	US 3360465 A (MURRAY WARMAN), 26 December 1967 (26.12.67), column 5, example 13	1,6-8,10-11, 15-16,20, 32-34
A	US 4826633 A (DALE D. CARR ET AL), 2 May 1989 (02.05.89)	1-38
		}
A	GB 1565716 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT), 23 April 1980 (23.04.80)	2
		· .
		·
	·	
		·
}	·	
1		•

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. Information on patent family members 06/08/97 PCT/US 97/08624 Patent document cited in search report Publication date Patent family member(s) Publication 26/06/96 26/06/96 MO 9617910 A1 13/06/96 ΑU 4422696 A ΑU 4422796 A 26/06/96 ΑU 4516296 A ΑŪ 4517296 A 26/06/96 00/00/00 FI 972417 D 00/00/00 FΙ 972418 D FI 972419 D 00/00/00 00/00/00 FI 972420 D 00/00/00 NO 972586 D 00/00/00 NO 972588 D NO 972589 D 00/00/00 00/00/00 NO 972590 D 13/06/96 WO 9617907 A 9617908 A WO 13/06/96 9617909 A 13/06/96 WO ΕP 0536814 A1 14/04/93 EP 0480479 A.B 15/04/92 68914448 D,T DE 25/08/94 04/07/96 68925537 D,T DE 00/00/00 68927916 D DE EP 0406479 A,B 09/01/91 08/04/92 EP 0479338 A 16/06/94 2051340 T ES ES 2082341 T 16/03/96 16/05/97 E\$ 2099120 T 31/05/91 JP 3128992 A KR 9505694 B 29/05/95 3128991 A 31/05/91 JP 08/10/91 EΡ 05/06/91 æ 3227397 A 0430657 A1 WO 931121 A1 10/06/93 NONE 00/00/00 BE 649019 A บร 3360465 26/12/67 DE 1281422 B 00/00/00 00/00/00 FR 1404708 A 00/00/00 GB 1049716 A NL 6406651 A 14/12/64 US 4826633 A 02/05/89 NONE 348500 B 26/02/79 GB 1565716 A 23/04/80 AT 08/07/80 1081254 A CA 18/08/77 DE 2604545 A,C 02/09/77 FR 2340300 A,B 11/08/77 52095604 A

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

フロントページの続き

(51)Int.Cl.'

識別記号

FΙ

ティコート (参考)

C 0 9 K 7/02

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載 【部門区分】第3部門第3区分 【発行日】平成17年2月10日(2005.2.10)

【公表番号】特表2000-514470(P2000-514470A)

【公表日】平成12年10月31日(2000.10.31)

【出願番号】特願平9-542690

【国際特許分類第7版】

C 1 0 M 105/38

7/02 // C09K

> 40:04 C 1 0 N

40:08 C 1 0 N

C10N 40:26

50:10 C 1 0 N

[FI]

C 1 0 M 105/38

C 0 9 K 7/02

40:04 C 1 0 N

40:08 C 1 0 N

40:26 C 1 0 N

C 1 0 N 50:10

【手続補正書】

【提出日】平成16年5月20日(2004.5.20)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】補正の内容のとおり

【補正方法】変更

【補正の内容】



手続補 正 謇

平成16年5月20日

特許庁長官 段



- 事件の表示平成9年特許願第542690号
- 2 補正をする者名 称 エクソンモービル・ケミカル・パテンツ・インク
- 3 代 理 人 住 所 東京都千代田区永田町1丁目11番28号 相互永田町ビルディング8階 電話 3581-9371 氏 名 (7101) 弁理士 山 崎 行 造_に
- 4 補正対象書類名
- 5 補正対象項目名 請求の範囲

請求の範囲

6 補正の内容 別紙のとおり。



請求の範囲

1. <u>以下の反応生成物を含む生分解性合成エステル・ベース・ストック:</u> ネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、エチレン又はプロピレン グリコール、ブタンジオール、ソルビトール及び2ーメチルプロパンジオール からなる群から選択される分岐又は線状アルコール; 及び

分岐 $C_s \sim C_{10}$ 酸異性体を含む酸混合物であって、該酸混合物はB-炭素又はそれより高級の炭素に分岐を有して、一分子当たり0. $3 \sim 1$. 9の範囲内の平均分岐数を有し、10%以下が四級炭素を含み、該エステル・ベース・ストックは、次の特性、即ち、スターム試験変法で測定して28日間に少なくとも60%の生分解、-25%失満の流動点及U-25%において7500cps未満の粘度を示し、但し、該酸混合物は分岐オキソ2-エチルへキサン酸ではない。

- 2. 前記分岐<u>酸異性体</u>が次の工程から作られる、請求項1に係る生分解性合成 エステル・ベース・ストック:
- (a) $C_4 \sim C_8$ のオレフィン性供給材料を、ヒドロホルミル化触媒の存在下、アルデヒドが豊富な粗反応生成物の生成を促進する反応条件下において、一酸化炭素及び水素との反応により、ヒドロホルミル化し;
- (b) 前記のアルデヒドが豊富な粗反応生成物を脱金属し、それから前記ヒドロホルミル化触媒と実質的に触媒を含まず且つアルデヒドが豊富な粗反応生成物を回収し;
- (c) 前記の触媒を含まず且つアルデヒドが豊富な粗反応生成物を、濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物とアルデヒドに乏しい生成物とに分け;
- (d) 前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を、(i)酸素又は(i i)酸形成触媒の存在下で且つ水素の不存在下に水と反応させ、それにより、前記の濃縮されたアルデヒドが豊富な生成物を粗酸生成物に転化させ;及び
- (e) 前記の粗酸生成物を前記分岐<u>酸異性体</u>と酸に乏しい生成物とに分ける。
- 3. 前記分岐酸異性体がイソオクタン酸であり、3,5ージメチルヘキサン酸、
- 4,5-ジメチルヘキサン酸、3,4-ジメチルヘキサン酸、5-メチルヘプ タン酸、4-メチルヘプタン酸、及び混合メチルヘプタン酸類及びジメチルヘ キサン酸類の混合物を含むイソオクタン酸である、請求項2に係る生分解性合 成エステル・ベース・ストック。
- 4. 前記分岐<u>酸異性体</u>が約 $C_7 \sim C_{10}$ <u>の酸である</u>、請求項1 に係る生分解性合成エステル・ベース・ストック。
- 5. 前記分岐<u>酸異性体</u>が少なくとも三種の異性体を有する、請求項1に係る生 分解性合成エステル・ベース・ストック。

- 6. 前記エステルが、少なくとも175℃の高いCOC引火点をも示す、請求項1に係る生分解性合成エステル・ベース・ストック。
- 7. 前記分岐<u>酸異性体が、イソペンタン酸、イソヘキサン酸、イソヘプタン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸及びイソデカン酸</u>からなる群から選択される<u>少なくとも1の酸を含み、但し、前記イソノナン酸が3,5,5ートリメチルヘキサン酸ではない</u>、請求項1に係る生分解性合成エステル・ベース・ストック。
- 8. 請求項1の生分解性合成エステル及び潤滑剤添加剤バッケージを含む生分 解性潤滑剤。
- 9. 前記生分解性潤滑剤が、前記分岐合成エステルと、菜種油及び他の合成エステルからなる群から選択される少なくとも一つのエステルとのブレンドである、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 10. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 分散剤、潤滑油流れ改良剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤、消泡剤、耐磨 耗剤、シール膨潤剤及び摩擦改質剤からなる群から選択される複数の添加剤を 含む、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 11. 前記生分解性潤滑剤がキヤ油である、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 12. 前記生分解性潤滑剤が飛行機の発進装置油である、<u>請求項8</u>に係る生分解性潤滑剤。
- 13. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 カップリング剤、分散剤、極圧剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤、消泡剤、 耐磨耗剤及び摩擦改質剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を 含む、請求項12に係る生分解性潤滑剤。
- 14. 前記生分解性潤滑剤が作動液である、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 15. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、境界潤滑剤、 抗乳化剤、流動点低下剤及び消泡剤からなる群から選択される少なくとも一つ の添加剤を含む、請求項14に係る生分解性潤滑剤。
- 16.前記生分解性潤滑剤が掘削泥水である、<u>請求項8</u>に係る生分解性潤滑剤。 17.前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、増量剤、水損 失改良剤、殺菌剤及びドリルの穂先用潤滑剤からなる群より選択される少なく とも1の添加剤を含む、<u>請求項16</u>に係る生分解性潤滑剤。
- 18. 前記生分解性潤滑剤が水車油である、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 19. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 増粘剤、分散剤、抗乳化剤、色安定化剤、清浄剤及び防錆剤及び流動点低下剤 からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、<u>請求項8</u>に係る生 分解性潤滑剤。
- 20. 前記生分解性潤滑剤がグリースである、請求項8に係る生分解性潤滑剤。

- 21. 前記添加剤パッケージが、増粘剤、粘度指数向上剤、酸化防止剤、極圧剤、清浄剤及び防錆剤、流動点低下剤、金属不活化剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、<u>請求項20</u>に係る生分解性潤滑剤。
- 22. 前記生分解性潤滑剤が圧縮機油である、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 23. 前記添加剤パッケージが、酸化防止剤、清浄剤及び防錆剤、金属不活化剤、添加剤可溶化剤、抗乳化剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少なくとも一つの添加剤を含む、請求項22に係る生分解性潤滑剤。
- 24. 更に溶剤を含む、請求項8に係る生分解性潤滑剤。
- 25. 前記生分解性合成エステル・ベース・ストックが、約50~99重量%の量で存在し、前記潤滑剤添加剤パッケージが、約1~20重量%の潤滑剤添加剤パッケージの量で存在し、且つ溶剤が約0~30%の量で存在する、<u>請求</u>項24に係る生分解性潤滑剤。
- 26. 前記生分解性潤滑剤が2サイクル・エンジン油である、<u>請求項8</u>に係る 生分解性潤滑剤。
- 27. 前記添加剤パッケージが、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、 カップリング剤、分散剤、極圧剤、色安定化剤、界面活性剤、稀釈剤、清浄剤 及び防錆剤、流動点低下剤、消泡剤及び耐磨耗剤からなる群から選択される少 なくとも一つの添加剤を含む、<u>請求項26</u>に係る生分解性潤滑剤。